

(19) 世界知的所有権機関  
国際事務局(43) 国際公開日  
2004 年12 月16 日 (16.12.2004)

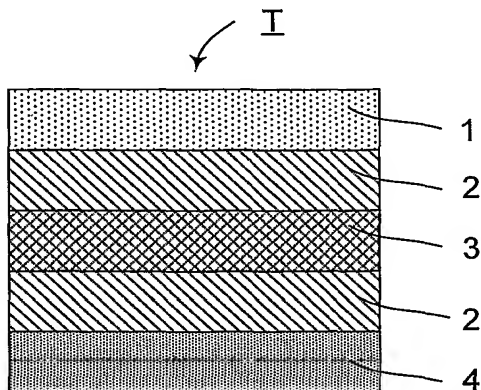
PCT

(10) 国際公開番号  
WO 2004/109811 A1

- (51) 国際特許分類: H01L 31/048, C08L 23/26
- (21) 国際出願番号: PCT/JP2004/008009
- (22) 国際出願日: 2004 年6 月2 日 (02.06.2004)
- (25) 国際出願の言語: 日本語
- (26) 国際公開の言語: 日本語
- (30) 優先権データ:  
特願2003-158267 2003 年6 月3 日 (03.06.2003) JP
- (71) 出願人 (米国を除く全ての指定国について): 大日本印刷株式会社 (DAI NIPPON PRINTING CO., LTD.) [JP/JP]; 〒1628001 東京都新宿区市谷加賀町一丁目1 番1 号 Tokyo (JP).
- (72) 発明者; および
- (75) 発明者/出願人 (米国についてのみ): 大井 香澄 (OI, Kasumi) [JP/JP]; 〒1628001 東京都新宿区市谷加賀町一丁目1 番1 号 大日本印刷株式会社内 Tokyo (JP). 中川 博喜 (NAKAGAWA, Hiroki) [JP/JP]; 〒1628001 東京都新宿区市谷加賀町一丁目1 番1 号 大日本印刷株式会社内 Tokyo (JP). 宮地 貴樹 (MIYACHI, Takaki) [JP/JP]; 〒1628001 東京都新宿区市谷加賀町一丁目1 番1 号 大日本印刷株式会社内 Tokyo (JP). 井上 功 (INOUE, Isao) [JP/JP]; 〒1628001 東京都新宿区市谷加賀町一丁目1 番1 号 大日本印刷株式会社内 Tokyo (JP). 大川 晃次郎 (OHKAWA, Koujiro) [JP/JP]; 〒1628001 東京都新宿区市谷加賀町一丁目1 番1 号 大日本印刷株式会社内 Tokyo (JP).
- (74) 代理人: 山下 昭彦, 外(YAMASHITA, Akihiko et al.); 〒1040031 東京都中央区京橋一丁目1 6 番1 0 号 オークビル京橋4 階 東京セントラル特許事務所内 Tokyo (JP).
- (81) 指定国 (表示のない限り、全ての種類の国内保護が可能): AE, AG, AL, AM, AT, AU, AZ, BA, BB, BG, BR, BW, BY, BZ, CA, CH, CN, CO, CR, CU, CZ, DE, DK, DM, DZ, EC, EE, EG, ES, FI, GB, GD, GE, GH, GM, HR, HU, ID, IL, IN, IS, KE, KG, KP, KR, KZ, LC, LK, LR, LS, LT, LU, LV, MA, MD, MG, MK, MN, MW, MX, MZ, NA, NI, NO, NZ, OM, PG, PH, PL, PT, RO, RU, SC, SD, SE, SG, SK, SL, SY, TJ, TM, TN, TR, TT, TZ, UA, UG, US, UZ, VC, VN, YU, ZA, ZM, ZW.
- (84) 指定国 (表示のない限り、全ての種類の広域保護が可能): ARIPO (BW, GH, GM, KE, LS, MW, MZ, NA, SD, SL, SZ, TZ, UG, ZM, ZW), ユーラシア (AM, AZ, BY, KG, KZ, MD, RU, TJ, TM), ヨーロッパ (AT, BE, BG, CH, CY, CZ, DE, DK, EE, ES, FI, FR, GB, GR, HU, IE, IT, LU, MC, NL, PL, PT, RO, SE, SI, SK, TR), OAPI (BF, BJ, CF, CG, CI, CM, GA, GN, GQ, GW, ML, MR, NE, SN, TD, TG).
- 添付公開書類:  
— 国際調査報告書  
— 請求の範囲の補正の期限前の公開であり、補正書受領の際には再公開される。
- 2 文字コード及び他の略語については、定期発行される各PCTガゼットの巻頭に掲載されている「コードと略語のガイダンスノート」を参照。

(54) Title: FILLER LAYER FOR SOLAR CELL MODULE AND SOLAR CELL MODULE USING SAME

(54) 発明の名称: 太陽電池モジュール用充填材層およびこれを用いた太陽電池モジュール



(57) Abstract: A low-cost filler layer for a solar cell module is disclosed which is excellent in adhesiveness to a transparent front plate and a backside protective sheet of the solar cell module. During production of the solar cell module, the filler layer does not deteriorate the working environment and the like and has no adverse affect on a solar cell device, an electrode or the like. The filler layer for solar cell modules contains a silane-modified resin obtained by polymerizing an ethylenically unsaturated silane compound with polyethylene for polymerization, and is characterized in that the gel fraction is not more than 30% when the filler layer is used in a solar cell module.

(57) 要約: 本発明は、太陽電池モジュールの製造時において、透明前面基板および裏面保護シートとの接着性に優れ、作業環境等を悪化させず、太陽電池素子や電極等に悪影響を与えない、安価な太陽電池モジュール用充填材層を提供することを主目的とするものである。上記目的を達成するために、本発明は、エチレン性不飽和シラン化合物と重合用ポリエチレンとを

重合させてなるシラン変成樹脂を有する太陽電池モジュール用充填材層であって、前記太陽電池モジュール用充填材層を太陽電池モジュールに用いた場合、ゲル分率が30%以下であることを特徴とする太陽電池モジュール用充填材層を提供する。

WO 2004/109811 A1

## 明 細 書

太陽電池モジュール用充填材層およびこれを用いた太陽電池モジュール

## 5     〔技術分野〕

本発明は、シラン変成樹脂を有する太陽電池モジュール用充填材層、および、これを用いた太陽電池モジュールに関する。

## 〔背景技術〕

10     近年、環境問題に対する意識の高まりから、クリーンなエネルギー源としての太陽電池が注目され、現在、種々の形態からなる太陽電池モジュールが開発され、提案されている。

一般に、上記の太陽電池モジュールは、例えば、透明前面基板、充填材層、光起電力素子としての太陽電池素子、充填材層、および、裏面保護シート等の順に積層し、  
15     次いで、これらを真空吸引して加熱圧着するラミネーション法等を利用して製造される。

現在、太陽電池モジュール用充填材層を構成する材料としては、その加工性、施工性、製造コスト、その他等の観点から、厚さ  $100\ \mu\text{m} \sim 1500\ \mu\text{m}$  のエチレン-酢酸ビニル共重合体樹脂が、最も一般的なものとして使用されている。

20     しかしながら、エチレン-酢酸ビニル共重合体樹脂からなる充填材層は、透明前面基板、あるいは裏面保護シートとの接着強度が必ずしも十分ではなく、屋外での長時間使用にその弱点が露呈するという問題がある。さらに、エチレン-酢酸ビニル共重合体樹脂からなる充填材層を使用して太陽電池モジュールを製造する場合、その加熱圧着等の条件により、エチレン-酢酸ビニル共重合体樹脂が熱分解等を起こし、酢酸  
25     ガス等を発生し、これらが、作業環境等を悪化させるばかりではなく、太陽電池素子や電極等に悪影響を与え、劣化、発電効率の低下等を引き起こすという問題もある。

そこで、充填材層の材料である樹脂に、透明前面基板あるいは裏面保護シートに用いられるガラスや金属等との接着性を付与する方法として、樹脂にシラン化合物を重合させる方法が行われている。

一般に、重合方法としては、共重合、グラフト重合の２つがある。共重合は、モノマーと触媒と不飽和シラン化合物を混合し、所定の温度・圧力で重合反応させる方法であり、グラフト重合は、ポリマーと遊離ラジカル発生剤と不飽和シラン化合物を混合し、所定の温度で攪拌しポリマー主鎖や側鎖にシラン化合物を重合させる方法である。

例えば、加熱圧着時に充填材層の材料である樹脂に架橋反応を生起させて材料自体の強度、および耐熱性や耐久性等を付与すべく、エチレンー酢酸ビニル共重合体樹脂にシランカップリング剤および有機過酸化物を添加した樹脂シートを用いる方法（特公昭６２－１４１１１号公報）、有機シラン化合物でグラフト変性したエチレンー酢酸ビニル共重合体樹脂に有機過酸化物を添加した樹脂シートを用いる方法（特公昭６２－９２３２号公報）、および、エチレンーエチレン性不飽和カルボン酸エステルーエチレン性不飽和シラン化合物三元共重合体樹脂に有機過酸化物を添加した樹脂シートを用いる方法（特公平６－１０４７２９号公報）が提案されているが、いずれも有機過酸化物を含有させていることから、それらのシート成形時において有機過酸化物が分解して樹脂の架橋反応を惹起し、シート成形が困難となったり、積層時の加工性が低下したり、あるいは、積層時に有機過酸化物由来の分解生成物が接着界面に残存して接着阻害を引き起こす等の欠点を有している。

また、シラン化合物はコストが高いという問題もあり、依然として更なる改良が求められている。

#### [発明の開示]

そこで本発明は、太陽電池モジュールの製造時において、透明前面基板および裏面保護シートとの接着性に優れ、作業環境等を悪化させず、太陽電池素子や電極等に悪影響を与えない、安価な太陽電池モジュール用充填材層を提供することを主目的とする。

本発明においては、上記目的を達成するために、エチレン性不飽和シラン化合物と重合用ポリエチレンとを重合させてなるシラン変成樹脂を有する太陽電池モジュール用充填材層であって、前記太陽電池モジュール用充填材層を太陽電池モジュールに用いた場合、ゲル分率が３０％以下であることを特徴とする太陽電池モジュール用充填

材層を提供する。

上記のような太陽電池モジュール用充填材層は、シラン変成樹脂を有しているため、太陽電池モジュール用透明前面基板および裏面保護シート、例えばガラス等との密着性に優れ、かつ主鎖がポリエチレンからなるものであることから有害なガスを発生させず、作業環境を悪化させないという利点を有する。また、太陽電池モジュールに用いた場合、太陽電池モジュール用充填材層のゲル分率が上記範囲とすることにより、短時間でのシールが可能となり、さらに加熱処理等が不要であるという利点を有する。さらに、このようにゲル分率が低いことから、加熱することにより容易に充填材層を軟化・熔融させることが可能であり、これにより、例えば太陽電池モジュールに用いられている太陽電池素子や透明前面基板等の再利用を可能とすることができる。

本発明においては、上記太陽電池モジュール用充填材層が、さらに添加用ポリエチレンを有することが好ましい。上記シラン変成樹脂はコストが高いため、太陽電池モジュール用充填材層が添加用ポリエチレンを含有することが好ましいのである。

本発明においては、さらに上記重合用ポリエチレンと上記添加用ポリエチレンとが、低密度ポリエチレン、中密度ポリエチレン、高密度ポリエチレン、超低密度ポリエチレン、極超低密度ポリエチレン、および直鎖状低密度ポリエチレンからなる群から選択される少なくとも一つのポリエチレンであることが好ましい。

さらに、上記太陽電池モジュール用充填材層中に含まれる上記シラン変成樹脂の量が、1～80重量%であることが好ましい。上記シラン変成樹脂は、重合用ポリエチレンと重合させたエチレン性不飽和シラン化合物を有することにより、ガラス等との密着性が付与されるものである。よって、上記太陽電池モジュール用充填材層は、上記のようなシラン変成樹脂を有することにより、太陽電池モジュール用透明前面基板、裏面保護シート、および太陽電池素子との密着性が高くなる。ゆえに、上記範囲に満たない場合は、ガラス等との密着性が不足し、上記範囲を超えると、ガラス等との密着性は変わらずコスト高となると考えられるからである。

さらに、上記太陽電池モジュール用充填材層中に、Si（珪素）が、重合Si量として8ppm～3500ppm含有されていることが好ましい。上述した理由と同様に、この範囲内で重合Si量を有することにより、太陽電池素子や透明前面基板との接着性を良好なものとすることができるからである。

さらに、本発明においては、上記太陽電池モジュール用充填材層中に、シラノール縮合触媒が実質的に含まれていないことが好ましい。本発明においては、充填材層中のゲル分率が所定の値以下であるところに特徴を有するものであり、エチレン性不飽和シラン化合物を用いた樹脂組成物において水架橋等のために一般的に配合されるシラノール縮合触媒が含有されていたのでは、上記所望のゲル分率を得ることができないからである。

本発明においては、また、上記太陽電池モジュール用充填材層を有することを特徴とする太陽電池モジュールを提供する。本発明の太陽電池モジュール用充填材層を有する太陽電池モジュールは、上述したような太陽電池モジュール用充填材層の利点を有し、かつコスト的に有利であるという利点を有するものである。

本発明の太陽電池モジュール用充填材層は、太陽電池モジュール用保護シートに用いられるガラスとの密着性に優れ、作業環境を悪化させないという利点を有する、また、太陽電池モジュールの製造時において短時間でのシールが可能となり、加熱処理等が不要であるといった効果を奏する。さらに、太陽電池モジュールに含まれる部材の再利用を可能とするといった効果も有するものである。

#### [図面の簡単な説明]

図1は、本発明の太陽電池モジュールの一例を示す概略断面図である。

#### [発明を実施するための最良の形態]

本発明には、太陽電池モジュール用充填材層、およびこれを用いた太陽電池モジュールが含まれる。以下、太陽電池モジュール用充填材層とこれを用いた太陽電池モジュールについて説明する。なお、本発明において、シートとは、シート状物ないしフィルム状物のいずれの場合も意味するものであり、また、フィルムとは、フィルム状物ないしシート状物のいずれの場合も意味するものである。

##### A. 太陽電池モジュール用充填材層

まず、本発明の太陽電池モジュール用充填材層について説明する。本発明の太陽電池モジュール用充填材層は、エチレン性不飽和シラン化合物と重合用ポリエチレンとを重合させてなるシラン変成樹脂を有する太陽電池モジュール用充填材層であって、

前記太陽電池モジュール用充填材層を太陽電池モジュールに用いた場合、ゲル分率が所定の値以下であることを特徴とするものである。

以下このような太陽電池モジュール用充填材層の各構成について説明する。

#### 1. シラン変成樹脂

- 5      本発明に用いられるシラン変成樹脂は、エチレン性不飽和シラン化合物と重合用ポリエチレンとを重合させてなるものである。このようなシラン変成樹脂は、エチレン性不飽和シラン化合物と重合用ポリエチレンとラジカル発生剤とを混合し、高温で溶解攪拌し、エチレン性不飽和シラン化合物を重合用ポリエチレンにグラフト重合させることにより得ることができる。
- 10      本発明に用いられる重合用ポリエチレンとしては、ポリエチレン系のポリマーであれば特に限定されえないが、具体的には、低密度ポリエチレン、中密度ポリエチレン、高密度ポリエチレン、超低密度ポリエチレン、極超低密度ポリエチレン、または直鎖状低密度ポリエチレンが好ましい。また、これらを1種ないし2種以上を用いることもできる。
- 15      さらに、上記重合用ポリエチレンとしては、側鎖の多いポリエチレンが好ましい。ここで通常、側鎖の多いポリエチレンは、密度が低く、側鎖の少ないポリエチレンは、密度が高いものである。したがって、密度の低いポリエチレンが好ましいといえる。本発明における重合用ポリエチレンの密度としては、 $0.850 \sim 0.960 \text{ g/cm}^3$ の範囲内が好ましく、より好ましくは $0.865 \sim 0.930 \text{ g/cm}^3$ の範囲内
- 20      である。重合用ポリエチレンが側鎖の多いポリエチレン、すなわち密度の低いポリエチレンであれば、エチレン性不飽和シラン化合物が重合用ポリエチレンにグラフト重合しやすくなるからである。
- 25      一方、本発明に用いられるエチレン性不飽和シラン化合物としては、上記重合用ポリエチレンとグラフト重合するものであれば特に限定されないが、例えばビニルトリメトキシシラン、ビニルトリエトキシシラン、ビニルトリプロポキシシラン、ビニルトリイソプロポキシシラン、ビニルトリブトキシシラン、ビニルトリペンチロキシシラン、ビニルトリフェノキシシラン、ビニルトリベンジルオキシシラン、ビニルトリメチレンジオキシシラン、ビニルトリエチレンジオキシシラン、ビニルプロピオニルオキシシラン、ビニルトリアセトキシシラン、および、ビニルトリカルボキシシラン

からなる群から選択される少なくとも1種類のものを用いることができる。本発明においては、中でも、ビニルトリメトキシシランが好適に用いられる。

本発明においては、太陽電池モジュール用充填材層中に含まれるエチレン性不飽和シラン化合物の量は、10 ppm以上が好ましく、より好ましくは20 ppm以上である。上記太陽電池モジュール用充填材層は、重合用ポリエチレンと重合させた上記エチレン性不飽和シラン化合物を有することにより、後述する太陽電池モジュール用透明前面基板および裏面シートに用いられる材料、例えばガラス等との密着性が実現するものである。よって、上述した範囲に満たない場合は、ガラス等との密着性が不足するからである。また、エチレン性不飽和シラン化合物の量の上限は、4000 ppm以下が好ましく、より好ましくは3000 ppm以下である。上限値は、ガラス等との密着性の点からは限定されるものではないが、上述した範囲を超えると、ガラス等との密着性は変わらずコストが高くなるからである。

また、上記シラン変成樹脂は、上記太陽電池モジュール用充填材層中に好ましくは1～80重量%の範囲内、さらに5～70重量%の範囲内で含有されることが好ましい。この場合も同様に、上記シラン変成樹脂は、重合用ポリエチレンと重合させたエチレン性不飽和シラン化合物を有することにより、ガラス等との密着性が付与されるものである。よって、上記太陽電池モジュール用充填材層は、上記のようなシラン変成樹脂を有することにより、ガラス等との密着性が高くなる。ゆえに、ガラス等との密着性、かつコストの点から、上述した範囲内が好適に用いられる。

さらに、上記シラン変成樹脂は、190℃でのメルトマスフローレートが0.5～10 g/10分であるものが好ましく、1～8 g/10分であるものがより好ましい。太陽電池モジュール用充填材層の成形性、透明前面基板および裏面保護シートとの接着性等に優れるからである。

また、上記シラン変成樹脂の融点は、110℃以下であることが好ましい。上記太陽電池モジュール用充填材層を用いた太陽電池モジュールの製造時において、加工性等の面から上記範囲が好適である。

上記シラン変成樹脂に添加するラジカル発生剤としては、例えば、ジイソプロピルベンゼンヒドロパーオキシド、2,5-ジメチルー2,5-ジ(ヒドロパーオキシ)ヘキサン等のヒドロパーオキシド類；ジ-tert-ブチルパーオキシド、tert-ブチル

- クミルパーオキサイド、ジクミルパーオキサイド、2, 5-ジメチル-2, 5-ジ(ターブチルパーオキシ)ヘキサン、2, 5-ジメチル-2, 5-ジ(ターパーオキシ)ヘキシノー3等のジアルキルパーオキサイド類; ビス-3, 5, 5-トリメチルヘキサノイルパーオキサイド、オクタノイルパーオキサイド、ベンゾイルパーオキサイド、
- 5    o-メチルベンゾイルパーオキサイド、2, 4-ジクロロベンゾイルパーオキサイド等のジアシルパーオキサイド類; t-ブチルパーオキシアセテート、t-ブチルパーオキシ-2-エチルヘキサノエート、t-ブチルパーオキシピバレート、t-ブチルパーオキシオクトエート。t-ブチルパーオキシイソプロピルカーボネート、t-ブチルパーオキシベンゾエート、ジ-t-ブチルパーオキシフタレート、2, 5-ジメチル-2, 5-ジ(ベンゾイルパーオキシ)ヘキサン、2, 5-ジメチル-2, 5-ジ(ベンゾイルパーオキシ)ヘキシノー3等のパーオキシエステル類; メチルエチルケトンパーオキサイド、シクロヘキサノンパーオキサイド等のケトンパーオキサイド類等の有機過酸化物、または、アゾビスイソブチロニトリル、アゾビス(2, 4-ジメチルバレロニトリル)等のアゾ化合物等が挙げられる。
- 10    上記ラジカル発生剤の使用量は、上記シラン変成樹脂中に0.001重量%以上含まれることが好ましい。上記範囲未満では、エチレン性不飽和シラン化合物と重合用ポリエチレンとのラジカル重合が起こりにくいからである。

- なお、本発明に用いられるシラン変成樹脂は、合わせガラス用途にも使用できるものである。合わせガラスは、ガラスとガラスとの間に柔軟で強靱な樹脂等をはさんで
- 20    加熱圧着して作製されるものである。ガラスとの密着性の点から、上記シラン変成樹脂を用いることができる。

## 2. 添加用ポリエチレン

- 本発明においては、上記太陽電池モジュール用充填材層が、上記シラン変成樹脂と、添加用ポリエチレンとを有することが好ましい。上記添加用ポリエチレンとしては、
- 25    上述した「1. シラン変成樹脂」に記載したものと同様なものを挙げることができる。本発明においては、上記添加用ポリエチレンが上記重合用ポリエチレンと同一の樹脂であることが特に好ましい。上記シラン変成樹脂はコストが高いため、シラン変成樹脂のみで太陽電池モジュール用充填材層を形成するよりも、シラン変成樹脂と、添加用ポリエチレンとを混合して太陽電池モジュール用充填材層を形成する方が、コスト



的に有利であるからである。

添加用ポリエチレンの含有量は、上記シラン変成樹脂 100 重量部に対し、0.01 重量部～9900 重量部が好ましく、90 重量部～9,900 重量部がより好ましい。

上記シラン変成樹脂を 2 種類以上用いる場合には、その合計量 100 重量部に対し、添加用  
5 ポリエチレンの含有量が上記範囲となることが好ましい。

また、上記添加用ポリエチレンは、190℃でのメルトマスフローレートが 0.5～10 g/10 分であるものが好ましく、1～8 g/10 分であるものがより好ましい。太陽電池モジュール用充填材層の成形性等に優れるからである。

さらに、上記添加用ポリエチレンの融点は、130℃以下であることが好ましい。

10 上記太陽電池モジュール用充填材層を用いた太陽電池モジュールの製造時における加工性等の面から上記範囲が好適である。

なお、融点の測定方法としては、プラスチックの転移温度測定方法 (JISK7121) に準拠し、示差走査熱量分析 (DSC) により行う。なお、その際、融点ピークが 2 つ以上存在する場合は高い温度の方を融点とする。

### 15 3. 添加剤

本発明においては、必要により光安定剤、紫外線吸収剤、熱安定剤等の添加剤を用いることができる。本発明の太陽電池モジュール用充填材層が、上述したようなシラン変成樹脂を有し、これに光安定剤、紫外線吸収剤、熱安定剤を添加することで長期にわたり安定した機械強度、接着強度、黄変防止、ひび割れ防止、優れた加工適性を  
20 得ることができる。

上記光安定剤は、上記重合用ポリエチレンおよび上記添加用ポリエチレンに用いられるポリマー中の光劣化開始の活性種を捕捉し、光酸化を防止するものである。具体的には、ヒンダードアミン系化合物、ヒンダードピペリジン系化合物、およびその他等からなる群から選択される少なくとも 1 種類のものを使用することができる。

25 上記紫外線吸収剤は、太陽光中の有害な紫外線を吸収して、分子内で無害な熱エネルギーへと変換し、上記重合用ポリエチレンおよび上記添加用ポリエチレンに用いられるポリマー中の光劣化開始の活性種が励起されるのを防止するものである。具体的には、ベンゾフェノン系、ベンゾトリアゾール系、サルチレート系、アクリルニトリル系、金属錯塩系、ヒンダードアミン系、および、超微粒子酸化チタン (粒子径: 0.

0.1  $\mu\text{m}$  ~ 0.06  $\mu\text{m}$ ) あるいは超微粒子酸化亜鉛 (粒子径: 0.01  $\mu\text{m}$  ~ 0.04  $\mu\text{m}$ ) 等の無機系等の紫外線吸収剤からなる群から選択される少なくとも1種類のものを使用することができる。

また、上記熱安定剤としては、トリス (2, 4-ジ-tert-ブチルフェニル) フォスファイト、ビス [2, 4-ビス (1, 1-ジメチルエチル) -6-メチルフェニル] エチルエステル亜リン酸、テトラキス (2, 4-ジ-tert-ブチルフェニル) [1, 1-ビフェニル] -4, 4'-ジイルビスホスフォナイト、および、ビス (2, 4-ジ-tert-ブチルフェニル) ペンタエリスリトールジフォスファイト等のリン系熱安定剤; 8-ヒドロキシ-5, 7-ジ-tert-ブチルフラン-2-オンとo-キシレンとの反応生成物等のラクトン系熱安定剤を挙げることができる。また、これらを1種または2種以上を用いることもできる。中でも、リン系熱安定剤およびラクトン系熱安定剤を併用して用いることが好ましい。

上記光安定剤、紫外線吸収剤、熱安定剤等の含有量としては、その粒子形状、密度等によって異なるが、太陽電池モジュール用充填材層中、0.01 ~ 5重量%の範囲内が好ましい。

また、上記太陽電池モジュール用充填材層には、後述するように太陽電池モジュールに用いた場合、ゲル分率が低いことが本発明の特長であり、このため、シラン変成樹脂が架橋構造を形成する必要がない。したがって、架橋剤またはシラノール基の縮合反応を促進させる触媒等は特に必要ないものである。

具体的には、ジブチル錫ジアセテート、ジブチル錫ジラウレート、ジブチル錫ジオクテート、ジオクチル錫ジラウレートといったシリコーンのシラノール間の脱水縮合反応を促進するシラノール縮合触媒が、実質的に含まれていないことが好ましい。ここで、実質的に含まれていないとは、太陽電池モジュール用充填材層を構成する樹脂100重量部に対して、0.05重量部以下である場合をいう。

#### 4. 太陽電池モジュール用充填材層

本発明の太陽電池モジュール用充填材層の膜厚は、好ましくは10 ~ 2000  $\mu\text{m}$  の範囲内、特に100 ~ 1250  $\mu\text{m}$  の範囲内であることが好ましい。上記範囲より薄い場合は、セルを支持することができずセルの破損が生じやすくなり、上記範囲より厚い場合は、モジュール重量が重くなり設置時などの作業性が悪いばかりでなく、

コスト面でも不利となる場合もあるからである。

さらに、本発明においては、上記太陽電池モジュール用充填材層中に、Si（珪素）が、重合Si量として、8 ppm～3500 ppm、特に10 ppm～3000 ppm、中でも50 ppm～2000 ppmの範囲内で含有されていることが好ましい。

- 5 この範囲内で重合Si量を含む場合は、透明前面基板や太陽電池素子との密着性を良好に保つことができるからであり、またコスト面からも上述した範囲が好適であるといえる。

- 10 なお、本発明において、重合Si量を測定する方法としては、充填材層のみを加熱し燃焼させ灰化することにより重合SiはSiO<sub>2</sub>に変換されることから、灰分をアルカリ融解し、純水に溶解後定容しICP発光分析（高周波プラズマ発光分析装置：株式会社津製作所製ICPS8100）法により重合Si量の定量を行う方法が用いられる。

- 15 さらに、上記太陽電池モジュール用充填材層を構成する樹脂は、190℃でのメルトマスフローレートが0.5～10 g／10分であるものが好ましく、1～8 g／10分であるものがより好ましい。太陽電池モジュール用充填材層の成形性、透明前面基板および裏面保護シートとの接着性等に優れるからである。

- 20 また、上記太陽電池モジュール用充填材層を構成する樹脂の融点は、130℃以下であることが好ましい。上記太陽電池モジュール用充填材層を用いた太陽電池モジュールの製造時において、加工性等の面から上記範囲が好適である。また、太陽電池モジュールを構成する部品、例えば太陽電池素子や透明前面基板を再利用する場合に、融点がこの程度であれば容易に再利用することができるからである。なお、融点の測定方法は、上述したものと同様であるので、ここでの説明は省略する。

- 25 また、本発明の太陽電池モジュール用充填材層を太陽電池モジュールに用いた場合、ゲル分率が30%以下、特に10%以下、中でも0%であることが好ましい。本発明に用いられるシラン変成樹脂は、このように架橋構造を形成しないため、短時間でのシールが可能となり、加熱処理等の後処理が不要となる。また、ゲル分率が上記範囲を超えると、太陽電池モジュール製造時の加工性が低下し、透明前面基板および裏面保護シートとの密着性の改良が認められないこととなる。さらに、ゲル分率が上記範囲を超えると、太陽電池モジュールに含まれる部材、例えば太陽電池素子や透明前面基板を再生することが困難となるからである。

なお、太陽電池モジュール用充填材層を太陽電池モジュールに用いた場合のゲル分率とは、例えば、透明前面基板、太陽電池モジュール用充填材層、太陽電池素子、太陽電池モジュール用充填材層、および裏面保護シートを順次に積層し、次いでこれらを一体として、真空吸引して加熱圧着するラミネーション法等の通常の成形法を利用して、各層を一体成形体として太陽電池モジュールを製造した後の太陽電池モジュール用充填材層のゲル分率をいう。

このようなゲル分率の測定方法としては、太陽電池モジュール用充填材層を1 g 秤量し、80メッシュの金網袋に入れる。ソックスレー抽出器内に金網ごとサンプル投入し、キシレンを沸点下において還流させる。10時間連続抽出したのち、金網ごとサンプルごと取出し乾燥処理後秤量し、抽出前後の重量比較を行い残留不溶分の重量%を測定し、これをゲル分率とする方法が用いられる。

#### 5. 太陽電池モジュール用充填材層の製造方法

次に、本発明の太陽電池モジュール用充填材層の製造方法について説明する。

まず、本発明に用いられるシラン変成樹脂の調製方法について説明する。上記シラン変成樹脂は、エチレン性不飽和シラン化合物と重合用ポリエチレンとラジカル発生剤との混合物を、加熱溶融混合し、エチレン性不飽和シラン化合物を重合用ポリエチレンにグラフト重合させることにより得ることができる。

これらの混合物の加熱溶融混合方法としては、特に限定するものはないが、添加剤については予め添加剤を混練し樹脂に含有させたマスターバッチを主原料に混合し押し出し溶融させる方法が望ましい。また、加熱温度は、300℃以下が好ましく、さらには270℃以下が好ましい。上記シラン変成樹脂は、加熱によりシラノール基部分が架橋しゲル化しやすいので、上記範囲で溶融混合するのが好適である。

次に、本発明の太陽電池モジュール用充填材層の形成方法について説明する。上述したようにシラン変成樹脂を加熱溶融混合した後、得られたシラン変成樹脂をペレット化し、再度加熱溶融して押し出し加工することも可能であるが、押し出し機のホッパ内に上記シラン変成樹脂と、上記添加用ポリエチレンとを混合して投入し、シリンダ内で加熱溶融することも可能であり、コストの点では後者が優れている。

上述したような樹脂を加熱溶融した後、Tダイ、インフレなどの既存の方法により、100～1500  $\mu\text{m}$ の厚みのシート状に成形し、太陽電池モジュール用充填材層と

することができる。

再度加熱溶融する際の加熱温度は、300℃以下が好ましく、より好ましくは270℃以下である。上述したように、シラン変成樹脂は加熱によりシラノール基部分が架橋しゲル化しやすいので、上記範囲で樹脂を加熱溶融して押出すことが望ましい。

## 5 B. 太陽電池モジュール

次に、本発明の太陽電池モジュールについて説明する。本発明の太陽電池モジュールは、上述した本発明の太陽電池モジュール用充填材層を有することを特徴とするものである。図1は、太陽電池モジュール用充填材層を使用して製造した太陽電池モジュールの例を示す概略断面図である。図1に示すように、透明前面基板1、太陽電池モジュール用充填材層2、光起電力素子としての太陽電池素子3、太陽電池モジュール用充填材層2、および、裏面保護シート4等を順次に積層し、次いで、これらを一体として、真空吸引して加熱圧着するラミネーション法等の通常の成形法を利用し、各層を一体成形体として太陽電池モジュールTを製造することができる。

本発明において、このようなラミネーション法を用いた際のラミネート温度は、90℃～230℃の範囲内であることが好ましく、特に110℃～190℃の範囲内とすることが好ましい。上記範囲より温度が低いと十分に溶融せず透明前面基板、補助電極や太陽電池素子、裏面保護シートなどとの密着性が悪くなる可能性があり、上記範囲より温度が高くと大気中の水蒸気による水架橋が進行しやすくなりゲル分率がおおきくなる可能性があるため好ましくない。ラミネート時間は、5～60分の範囲内が好ましく、特に8～40分の範囲内が好ましい。上記範囲より時間が短いと十分に溶融せず同上の部材との密着性が悪くなる可能性があり、長いと工程上の問題となる場合があり、特に温度や湿度条件次第ではゲル分率の増加の要因となるからである。なお、湿度に関しては、高すぎるとゲル分率の増加につながり、低すぎると各種部材との密着性を低下させる可能性があるが、通常の大気環境下における湿度であれば特に問題は生じない。

本発明においては、太陽電池モジュール用充填材層は、透明前面基板と太陽電池素子との間に設けてもよいし、あるいは、透明前面基板と太陽電池素子との間および裏面保護シートと太陽電池素子との間に設けてもよい。

また、上記太陽電池モジュールにおいては、太陽光の吸収性、補強、その他等の目

的のもとに、さらに、他の層を任意に加えて積層することができるものである。

本発明の太陽電池モジュールに用いられる透明前面基板としては、ガラス、フッ素系樹脂シート、耐候性フィルムとバリアフィルムをラミネート積層した透明複合シート等を用いることができる。

- 5      また、本発明の太陽電池モジュールに用いられる裏面保護シートとしては、アルミニウム等の金属、フッ素系樹脂シート、耐候性フィルムとバリアフィルムをラミネート積層した複合シート等を用いることができる。

### C. 太陽電池モジュールの再利用

- 10      本発明においては、上述したように太陽電池モジュールとした場合の充填材層におけるゲル分率が、所定の範囲以下であるので、使用後の太陽電池モジュールや、製造工程中に不具合が生じた太陽電池モジュールの部材、具体的には太陽電池素子や透明前面基板の再利用を行うことができる。以下、このような再利用について、再生太陽電池素子の製造方法、再生透明前面基板の製造方法、および太陽電池モジュールの再利用方法に分けて説明する。

#### 15      (1) 再生太陽電池素子の製造方法

- まず、再生太陽電池素子の製造方法について説明する。再生太陽電池素子の製造方法は、上述した本発明の太陽電池モジュールから再生太陽電池素子を得る再生太陽電池素子の製造方法であって、太陽電池モジュールを充填材層の構成材料である樹脂の軟化点以上の温度に加熱する加熱工程と、加熱により可塑化した充填材層から太陽電池素子を  
20      剥離して分離する分離工程と、太陽電池素子に付着した充填材層を除去する除去工程とを有することを特徴としている。以下、各工程について説明する。

##### 1. 加熱工程

- 上記加熱工程においては、太陽電池モジュールを充填材層の構成材料である樹脂の軟化点以上の温度に加熱する。このように充填材層を構成する樹脂の軟化点以上の温  
25      度に加熱することにより、充填材層の構成材料である樹脂が軟化溶解し、充填材層を容易に除去することが可能となる。

加熱方法は、加熱した気体、液体もしくは粉末等の固体またはこれらの組み合わせを充填した容器の中に、本発明の太陽電池モジュールを投入する方法、あるいは加熱した熱板上に太陽電池モジュールを保持する方法などが挙げられる。

加熱温度は、充填材層の構成材料である樹脂の軟化点以上の温度であり、用いられている樹脂に応じて適宜選択される。ここで軟化点とは、上記熱可塑性樹脂の J I S 規格 K 7 2 0 6 に基づいて測定されるビカット軟化温度をいうものである。加熱工程における加熱温度としては、このビカット軟化温度と同じ温度か、または 0℃～25

5 0℃以上ビカット温度より高温であることが好ましく、より好ましくは 10℃～150℃以上、さらに好ましくは 20℃～130℃以上の範囲内であることが好ましい。

上記加熱工程における具体的な加熱温度としては、20℃～450℃の範囲内であることが好ましく、より好ましくは 30℃～350℃、さらに好ましくは 110℃～170℃の範囲内である。

## 10 2. 分離工程

本発明における分離工程では、上記加熱工程において加熱により充填材層が軟化溶解していることを利用して太陽電池素子を分離する工程である。分離方法は、太陽電池素子を損傷させることなく分離できるのであればいかなる方法により分離してもよい。

15 分離方法としては、分離手段を用いる方法、せん断応力を加える方法等を挙げることができる。

分離手段を用いる方法とは、上述した加熱工程において加熱した太陽電池モジュールの前面透明基板と太陽電池素子との間に配置された充填材層、および太陽電池素子と裏面保護シートとの間に配置された充填材層を、分離手段を通すことにより切断し、

20 太陽電池素子から前面透明基板と裏面保護シートとを分離する方法であり、このような分離手段としては、軟化状態の充填材層を切断できる手段であれば特に限定されるものではないが、ワイヤ等を好適な例として挙げることができる。

また、せん断力を加える方法としては、上述した加熱工程において加熱した太陽電池モジュールの太陽電池素子もしくは透明前面基板の少なくとも一方、および太陽電池素子もしくは裏面保護シートの少なくとも一方に対して横方向に押し出すことにより、充填材層にせん断力を加え、これにより太陽電池素子から前面透明基板と裏面保護シートとを分離する方法である。

25

## 3. 除去工程

本発明における除去工程では、分離後の太陽電池素子に付着した充填材層を除去す

る。この除去方法としては、物理的に充填材層を除去する物理的洗浄、化学的に充填材層を除去する化学的洗浄、またはこれらの組み合わせにより行う方法等を挙げることができる。

上記物理的洗浄としては、気体、液体もしくは固体またはこれらの組み合わせを吹き付ける方法や、布等で拭き取る方法などが挙げられる。物理的洗浄は、充填材層を加熱した状態で行うのが好ましい。例えば、加熱雰囲気中で圧縮空気や遠心力などを用いて鋼球ショットを高速に噴射するエアブラスト法やショットブラスト法などが挙げられる。付着物が充填材層に相当する部分である場合には、物理的洗浄が有用である。

- 10 この物理的洗浄においては、再生太陽電池素子が損傷しないように付着物を除去することが必要である。そのため、例えば、微粒子を吹き付けて充填材層を除去する場合には、微粒子の粒径は、 $5\text{ }\mu\text{m}\sim 500\text{ }\mu\text{m}$ の範囲内であることが好ましい。例えば、物理的洗浄に使用できる固体としては、スチール系研削材、ステンレス研削材、亜鉛研削材、銅研削材、アルミナ系研削材、炭化ケイ素系研削材、ガラス系研削材、樹脂系研削材、珪砂、セラミックビーズ、ジルコニア、スラグ、炭酸カルシウム、重曹などを挙げることができる。

また、液体としては、例えば、熱した有機溶剤や金属液体などが挙げられる。

気体としては、空気、窒素ガス、アルゴンガス、ヘリウムガス等の不活性気体などが挙げられる。

- 20 具体的には、キシレン等の有機溶媒に分離した太陽電池素子を浸漬させ、キシレンを還流させることにより、太陽電池素子表面から剥離層を除去する方法等を挙げることができる。

化学的洗浄としては、酸もしくはアルカリで処理する方法や、溶媒等により溶かし出す方法などが挙げられる。化学的洗浄に使用できる溶媒としては、付着した充填材層に依じて適宜選択することができる。

物理的洗浄と化学的洗浄とを組み合わせる方法としては、例えば、付着物を溶解する液体にある程度浸漬した後、エアブラスト法やショットブラスト法などにより付着物を完全に除去する方法などが挙げられる。

以上のようにして、付着物を除去することができ、必要に応じてアルコール等により洗浄し



て、使用済みの太陽電池モジュール等から容易に再生太陽電池素子を製造することができる。

## (2) 再生透明前面基板の製造方法

次に、再生透明前面基板の製造方法について説明する。再生透明前面基板の製造方法は、上述した本発明の太陽電池モジュールから再生透明前面基板を得る再生透明前面基板の製造方法であって、太陽電池モジュールを充填材層の構成材料であるゲル分率が所定の値以下である樹脂の軟化点以上の温度に加熱する加熱工程と、加熱により可塑化した充填材層を剥離して再生透明前面基板を分離する分離工程と、透明前面基板に付着した充填材層を除去する除去工程とを有することを特徴としている。以下、各工程について説明する。

### 10 1. 加熱工程

加熱工程においては、太陽電池モジュールを充填材層の構成材料である樹脂の軟化点以上の温度に加熱することにより、充填材層から前面透明基板を容易に剥離することを可能とするものである。加熱方法および加熱温度については「(1) 再生太陽電池素子の製造方法」の欄で述べたものと同様であるのでここでの記載は省略する。

### 15 2. 分離工程

分離工程においては、上記加熱工程において加熱により軟化・熔融した充填材層から透明前面基板剥離して分離する。分離方法は、透明前面基板を損傷させるものでなければ特に限定されるものではない。

具体的には、上記「B. 再生太陽電池素子の製造方法」の欄で説明した分離手段を用いる方法、せん断応力を加える方法を挙げることができる。

### 20 3. 除去工程

除去工程においては、透明前面基板に付着した充填材層を除去する。除去方法は、「(1) 再生太陽電池素子の製造方法」の欄で述べたものと同様、物理的洗浄、化学的洗浄、またはこれらの組み合わせにより行うことができる。詳しくは、前述したとおりであるので、ここでの記載は省略する。

充填材層を除去した後は、必要によりアルコール等の洗浄し、使用済みの太陽電池モジュールから容易に再生透明前面基板を製造することができる。

## (3) 太陽電池モジュールの再利用方法

最後に、太陽電池モジュールの再利用方法について説明する。太陽電池モジュールの再利用

方法は、「B. 太陽電池モジュール」の欄で説明した太陽電池モジュールから部材を再利用する太陽電池モジュールの再利用方法であって、太陽電池モジュールを充填材層の構成材料である樹脂の軟化点以上の温度に加熱する加熱工程と、加熱により可塑化した充填材層から部材を剥離して分離する分離工程とを有することを特徴とするものである。

このような太陽電池モジュールの再利用方法によれば、例えば太陽電池モジュール加工時に不良品とされた太陽電池モジュールに含まれる太陽電池素子等の部材や使用後回収した太陽電池モジュールの太陽電池素子等の部材を、再利用（リサイクルもしくはリユース）することが可能となり、コスト面で有利となりばかりでなく、地球環境を考慮した場合に好適であるといえる。

太陽電池モジュールの再利用方法に供される太陽電池モジュールとしては、上述したように、太陽電池モジュールの製造工程に不良品と判断された太陽電池モジュールや、使用後に回収された太陽電池モジュールを挙げることができる。

本発明においては、このような太陽電池モジュールに対して、加熱工程および分離工程を施すのであるが、この加熱工程および分離工程は、上記「（１）再生太陽電池素子の製造方法」もしくは上記「（２）再生透明前面基板の製造方法」に記載されたものと同様であるので、ここでの説明は省略する。

なお、このような太陽電池モジュールの再利用方法においては、上記分離工程において、同時に裏面保護シート分離工程が行われることが好ましい。

例えば、裏面保護シートとしてフッ素系樹脂などの加熱により有害ガスを発生する材料を用いる場合は、裏面保護シート分離工程において、太陽電池モジュールから裏面保護シートを分離することにより、太陽電池モジュールの再利用時に裏面保護シートの加熱による有害ガスの発生を防止できるので、環境負荷を低減することができるからである。

裏面保護シートの分離は、上記太陽電池素子もしくは透明前面基板の分離と同時に行ってよく、これらの部材を分離する前に行ってもよい。

本発明においては、部材としてそのまま用いる（リユース）か、部材を材料として用いる（リサイクル）かにより、分離工程後の処理が異なる。リユースする場合は、例えば部材が太陽電池素子や透明前面基板である場合は、上記「（１）再生太陽電池素

子の製造方法」もしくは上記「(2) 再生透明前面基板の製造方法」に記載の処理法等を用いてリユースされる。一方、リサイクルされる場合は、後述するリサイクル法によりリサイクルされる。

- 5      このように、リユースするかリサイクルするかは、例えば太陽電池素子等がすでに破損していることが明らかである等、太陽電池モジュールの段階で決定されている場合と、上記分離工程後、太陽電池素子や透明前面基板等の太陽電池モジュールを構成する部材の状態を見て決定される場合がある。

(リサイクル法)

- 10      本発明の太陽電池モジュールの再利用方法において、太陽電池モジュールの部材の内、太陽電池素子および透明前面基板のリサイクル方法について説明する。

#### 1. 太陽電池素子

分離工程後、素子が破損されている等の場合は、上述した除去工程を行わずに、もしくは行った後、太陽電池素子とは別の用途に用いることによりリサイクルされる。

- 15      具体的には、再溶融してSiインゴットを再形成しリサイクルする方法や、Si中に不純物が多い場合は、その他の用途に用いられる。

#### 2. 透明前面基板

この場合も、分離工程後、上述した除去工程を行わずに、もしくは行った後、透明前面基板とは別の用途として用いられる。具体的には、ガラス原料（カレット）として回収し、溶融して板ガラスを再形成する等の方法である。

- 20      なお、本発明は、上記実施形態に限定されるものではない。上記実施形態は、例示であり、本発明の特許請求の範囲に記載された技術的思想と実質的に同一な構成を有し、同様な作用効果を奏するものは、いかなるものであっても本発明の技術的範囲に包含される。

#### 25      [実施例]

以下に実施例を示し、本発明をさらに説明する。

##### [実施例1]

##### (1) シラン変成樹脂の調製

密度  $0.898 \text{ g/cm}^3$ 、 $190^\circ\text{C}$ でのメルトマスフローレート（表中、MFRと

称する) 2 g / 10 分の直鎖状低密度ポリエチレン (表中、LLDPE と称する) 9 8 重量部に対し、ビニルトリメトキシシラン 2 重量部、ラジカル発生剤としてジクミルパーオキサイド 0. 1 重量部を混合し、200℃で加熱熔融攪拌し、シラン変成樹脂を得た。

5 (2) 太陽電池モジュール用充填材層の形成

上記シラン変成樹脂 5 重量部と、密度 0. 898 g / cm<sup>3</sup> の直鎖状低密度ポリエチレン 9 5 重量部、別に作製した耐光剤、UVA、酸化防止剤入マスターバッチ 5 重量部 (直鎖状低密度ポリエチレン 8 5 重量部に対し、ヒンダードアミン系光安定剤 2. 5 重量部、ベンゾフェノン系紫外線吸収剤 7. 5 重量部、リン系熱安定剤 5 重量部を混合して熔融・加工しペレット化) を混合し、φ 25 mm 押出し機、300 mm 幅の T ダイスを有するフィルム成型機のホッパに投入し、押出し温度 230℃、引取り速度 3 m / min で厚さ 400 μm のシートを成膜した。上記の成膜化は、支障なく実施することができた。これら一連の操作により、太陽電池モジュール用充填材層を得た。

15 (3) 太陽電池モジュールの作製

上記の太陽電池モジュール用充填材層を使用し、厚さ 3 mm のガラス板、上記 (2) で作成した厚さ 400 μm の太陽電池モジュール用充填材層、結晶系シリコン太陽電池素子、上記の厚さ 400 μm の太陽電池モジュール用充填材層、および、厚さ 38 μm のポリフッ化ビニル系樹脂シート (PVF) と厚さ 30 μm のアルミニウム箔と厚さ 38 μm のポリフッ化ビニル系樹脂シート (PVF) とからなる積層シートとをアクリル系樹脂の接着剤層を介して積層し、その太陽電池素子面を上に向けて、太陽電池モジュール製造用の真空ラミネーターにて 150℃で 15 分間圧着し、太陽電池モジュールを得た。

[実施例 2 ~ 11]

25 (1) シラン変成樹脂の調製

表 1 に示す重合用ポリエチレン、エチレン性シラン化合物、ラジカル発生剤、およびその混合比にて、実施例 1 と同様にして、シラン変成樹脂を得た。

(表-1.)

	重合用ポリエチレン			エチレン性 不飽和 シラン化合物	ラジカル 発生剤	混合比率
	種類	密度 [g/cm <sup>3</sup> ]	MFR [g/10分]			
実施例 1	LLDPE	0.898	3.5	ビニルトリメチシラン	ジクミルハ-オキサイト	98:2:0.10
実施例 2	LLDPE	0.918	4.0	ビニルトリメチシラン	ト-ブチルハ-オキシ -2-エチルヘキサノエート	98:2:0.20
実施例 3	LLDPE	0.880	2.2	ビニルトリフノホキシシラン	ジクミルハ-オキサイト	97:3:0.15
実施例 4	LLDPE	0.906	11	ビニルトリメチシラン	ジクミルハ-オキサイト	98:2:0.15
実施例 5	LLDPE	0.935	3.5	ビニルトリメチシラン	ジクミルハ-オキサイト	97:3:0.15
実施例 6	実施例 1 と同じ					
実施例 7	実施例 1 と同じ					
実施例 8	実施例 1 と同じ					
実施例 9	実施例 1 と同じ					
実施例 10	実施例 1 と同じ					
実施例 11	実施例 1 と同じ					
比較例 1	—					
比較例 2	実施例 1 と同じ					
比較例 3	実施例 1 と同じ					
比較例 4	実施例 1 と同じ					

## (2) 太陽電池モジュール用充填材層の形成

表-2に示す条件にて、実施例1と同様にして、太陽電池モジュール用充填材層を  
5 得た。なお、表中、VLDP Eは超低密度ポリエチレン、LDPEは低密度ポリエチレンを示す。

(表-2)

	添加用ポリエチレン			混合比率				押出 温度 [°C]
	種類	密度 [g/cm <sup>3</sup> ]	MFR [g/10分]	シラン 変成樹脂	添加用 ポリエチレン	マスター バッチ	架橋 剤	
実施例 1	LLDPE	0.898	3.5	5	95	5	—	230
実施例 2	LLDPE	0.918	4.0	2	98	5	—	230
実施例 3	LLDPE	0.880	2.2	10	90	5	—	230
実施例 4	LLDPE	0.906	11	10	90	5	—	230
実施例 5	LLDPE	0.935	3.5	10	90	5	—	230
実施例 6	VLDPE	0.884	1.0	10	90	5	—	240
実施例 7	LDPE	0.917	7.2	20	80	5	—	230
実施例 8	LLDPE	0.898	3.5	40	60	5	—	230
実施例 9	LLDPE	0.898	3.5	40	60	5	—	230
実施例 10	—			100	0	5	—	230
実施例 11	—			100	0	5	—	230
比較例 1	LLDPE	0.898	3.5	—	100	5	—	230
比較例 2	LLDPE	0.898	3.5	5	100	—	—	230
比較例 3	LLDPE	0.898	3.5	20	80	5	5	230
比較例 4	—			100	0	5	5	230

## (3) 太陽電池モジュールの作製

実施例 2～8 については、実施例 1 と同様にして太陽電池モジュールを得た。実施例 9 および 10 については、真空ラミネーターによる加熱圧着を 170℃で 15 分間とし、実施例 11 については、170℃で 30 分とした以外は、実施例 1 と同様にして太陽電池モジュールを得た。

## [比較例 1]

シラン変成樹脂を用いなかった以外は、実施例 1 と同様とした。

## 10 [比較例 2]

マスターバッチを用いなかった以外は、実施例 1 と同様とした。

## [比較例 3～4]

表-2 に示す条件にて、実施例 1 と同様にして太陽電池モジュール用充填材層を得た以外は、実施例 1 と同様とした。架橋剤は、ジブチル錫ジラウレート 1 重量部を含有するマスターバッチ 5 重量部を、実施例 1 に記載したシラン変性樹脂、LLDPE、耐光剤、UVA、酸化防止剤入マスターバッチと混合して実施例 1 と同様に成膜する

ことにより添加した。

[評価]

- 実施例 1 ～ 11 および比較例 1 ～ 4 により得られた太陽電池モジュール用充填材層について、全光線透過率を、太陽電池モジュール製造後の太陽電池モジュール用充填材層について、ガラス密着性、ゲル分率、充填材除去状態を、および太陽電池モジュールについて、起電力低下率を以下の条件で測定した。評価結果を表 3 に示す。

(全光線透過率)

- 太陽電池モジュール用充填材層について、カラーコンピューターを使用して全光線透過率を測定した。具体的には、上記太陽電池モジュール用充填材層シートを表裏エチレンテトラフルオロエチレン共重合体フィルム（旭硝子社製、商品名：AFLEX 100N）に挟みこみ、太陽電池モジュール製造用の真空ラミネーターにより 150℃ 15 分間圧着した後、上記エチレンテトラフルオロエチレン共重合体フィルムを剥離し、加熱された上記太陽電池モジュール用充填材層シートのみを測定した。

- 太陽電池モジュールを温度 85℃ 湿度 85% の高温多湿状態にて 1000 時間放置した後、太陽電池モジュール用充填材層と透明前面基板であるガラスとの剥離強度を測定した。

(ゲル分率)

上記「A. 太陽電池モジュール用充填材層」の欄で説明した方法を用いて測定した。

(充填材除去状態)

- 太陽電池モジュールを製造し、冷却後 180℃ に加温したシリコンオイル中で、ワイヤを用いて、太陽電池素子および裏面保護シートを透明前面基板（ガラス板）から分離した。その後、シリコンオイルを洗浄除去し、180℃ に保持したホットプレート上に充填材層が残存した透明前面基板（ガラス板）を載せて、布により残った充填材層を拭き取った。そのときの拭き取りやすさ、拭き取り後の残存状態を評価した。

(起電力低下率)

JIS 規格 C8917-1989 に基づいて、太陽電池モジュールの環境試験を行い、試験前後の光起電力の出力を測定した。

(表－３)

	全光線透過率 [%]	ガラス 密着性	ゲル分率 [%]	充填材除去 状態	起電力低下率 [%]
実施例 1	8 8	良好	0	容易に除去	< 5
実施例 2	8 6	良好	0	容易に除去	< 5
実施例 3	8 9	良好	0	容易に除去	< 5
実施例 4	8 6	良好	0	容易に除去	< 5
実施例 5	8 5	良好	0	容易に除去	< 5
実施例 6	8 5	良好	0	容易に除去	< 5
実施例 7	7 4	良好	0	容易に除去	< 5
実施例 8	8 9	良好	0. 7	容易に除去	< 5
実施例 9	8 9	良好	9. 6	容易に除去	< 5
実施例 1 0	8 8	良好	1 6. 1	容易に除去	< 5
実施例 1 1	9 0	良好	2 8. 2	容易に除去	< 5
比較例 1	8 8	密着せず	0	容易に除去	—
比較例 2	8 8	良好	0	容易に除去	1 0
比較例 3	9 0	良好	3 2	一部除去不可	< 5
比較例 4	9 1	良好	4 4	除去不可	< 5

- 表－３から明らかなように、実施例の太陽電池モジュール用充填材層は、外観および全光線透過率が良好であった。また、ガラスとの剥離強度に関しては、温度 8 5℃
- 5 湿度 8 5 % の高温多湿状態にて 1 0 0 0 時間放置した後も、実施例の太陽電池モジュールの外観に変化はみられず、太陽電池モジュール用充填材層はガラスと容易に剥離することなく良好な状態であった。さらに、実施例の太陽電池モジュールの起電力低下率も良好であった。一方、比較例 1 の太陽電池モジュール用充填材層は、シラン
- 10 変成樹脂を用いなかったためガラスと密着せず、起電力低下率の評価を行うことができなかった。また、比較例 2 の太陽電池モジュール用充填材層は、マスターバッチを用いなかったため、温度 8 5℃湿度 8 5 % の高温多湿状態にて 1 0 0 0 時間放置すると黄変が見られた。

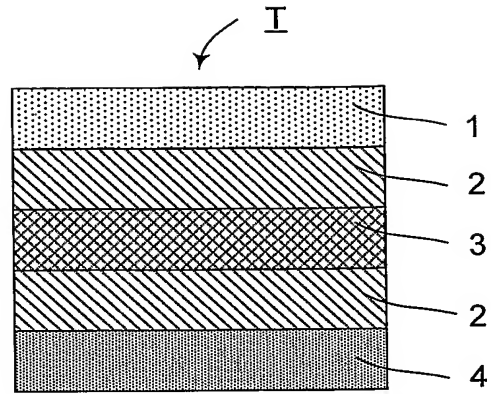


## 請求の範囲

1. エチレン性不飽和シラン化合物と重合用ポリエチレンとを重合させてなるシラン変成樹脂を有する太陽電池モジュール用充填材層であって、前記太陽電池モジュール用充填材層を太陽電池モジュールに用いた場合、ゲル分率が30%以下であることを特徴とする太陽電池モジュール用充填材層。
2. 前記太陽電池モジュール用充填材層が、さらに添加用ポリエチレンを有することを特徴とする請求の範囲第1項に記載の太陽電池モジュール用充填材層。
3. 前記重合用ポリエチレンと前記添加用ポリエチレンとが、低密度ポリエチレン、中密度ポリエチレン、高密度ポリエチレン、超低密度ポリエチレン、極超低密度ポリエチレン、および直鎖状低密度ポリエチレンからなる群から選択される少なくとも一つのポリエチレンであることを特徴とする請求の範囲第1項または第2項に記載の太陽電池モジュール用充填材層。
4. 前記太陽電池モジュール用充填材層中に含まれる前記シラン変成樹脂の量が、1～80重量%の範囲内であることを特徴とする請求の範囲第1項から第3項までのいずれかに記載の太陽電池モジュール用充填材層。
5. 前記太陽電池モジュール用充填材層中に、Si（珪素）が、重合Si量として、8ppm～3500ppm含有されていることを特徴とする請求の範囲第1項から第4項までのいずれかに記載の太陽電池モジュール。
6. 前記太陽電池モジュール用充填材層中に、シラノール縮合触媒が実質的に含まれていないことを特徴とする請求の範囲第1項から第5項までのいずれかに記載の太陽電池モジュール用充填材層。
7. 請求の範囲第1項から第6項までのいずれかに記載太陽電池モジュール用充填材層を有することを特徴とする太陽電池モジュール。

1/1

【図 1】



# INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.

PCT/JP2004/008009

A. CLASSIFICATION OF SUBJECT MATTER  
Int.Cl<sup>7</sup> H01L31/048, C08L23/26

According to International Patent Classification (IPC) or to both national classification and IPC

## B. FIELDS SEARCHED

Minimum documentation searched (classification system followed by classification symbols)  
Int.Cl<sup>7</sup> H01L31/04-31/048, C08L23/26, C08J5/18

Documentation searched other than minimum documentation to the extent that such documents are included in the fields searched  
Jitsuyo Shinan Koho 1922-1996 Toroku Jitsuyo Shinan Koho 1994-2004  
Kokai Jitsuyo Shinan Koho 1971-2004 Jitsuyo Shinan Toroku Koho 1996-2004

Electronic data base consulted during the international search (name of data base and, where practicable, search terms used)

## C. DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

Category*	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
Y	JP 2002-9309 A (Mitsubishi Chemical Corp.), 11 January, 2002 (11.01.02), Full text; all drawings	1-7
Y	Par. No. [0019]	2-7
Y	Par. No. [0014] (Family: none)	3-7
Y	JP 2003-46104 A (Dainippon Printing Co., Ltd.), 14 February, 2003 (14.02.03), Full text; all drawings (Family: none)	1-7
Y	JP 2003-46105 A (Dainippon Printing Co., Ltd.), 14 February, 2003 (14.02.03), Full text; all drawings (Family: none)	1-7

☒ Further documents are listed in the continuation of Box C. ☐ See patent family annex.

\* Special categories of cited documents:  
 "A" document defining the general state of the art which is not considered to be of particular relevance  
 "E" earlier application or patent but published on or after the international filing date  
 "L" document which may throw doubts on priority claim(s) or which is cited to establish the publication date of another citation or other special reason (as specified)  
 "O" document referring to an oral disclosure, use, exhibition or other means  
 "P" document published prior to the international filing date but later than the priority date claimed  
 "T" later document published after the international filing date or priority date and not in conflict with the application but cited to understand the principle or theory underlying the invention  
 "X" document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered novel or cannot be considered to involve an inventive step when the document is taken alone  
 "Y" document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered to involve an inventive step when the document is combined with one or more other such documents, such combination being obvious to a person skilled in the art  
 "&" document member of the same patent family

Date of the actual completion of the international search  
14 September, 2004 (14.09.04)

Date of mailing of the international search report  
05 October, 2004 (05.10.04)

Name and mailing address of the ISA/  
Japanese Patent Office

Authorized officer

Facsimile No.

Telephone No.

## INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.

PCT/JP2004/008009

## C (Continuation). DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

Category*	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
Y	JP 2003-49004 A (Mitsubishi Plastics, Inc.), 21 February, 2003 (21.02.03), Full text; all drawings (Family: none)	1-7
A	JP 5-186610 A (Mitsubishi Petrochemical Co., Ltd.), 27 July, 1993 (27.07.93), Full text; all drawings & JP 6-104729 B2	1-7
A	JP 58-60579 A (Mitsui Porikemikaru Kabushiki Kaisha), 11 April, 1983 (11.04.83), Full text; all drawings & JP 62-14111 B2	1-7
A	JP 58-63178 A (Mitsui Porikemikaru Kabushiki Kaisha), 14 April, 1983 (14.04.83), Full text; all drawings & JP 62-9232 B2	1-7

A. 発明の属する分野の分類 (国際特許分類 (IPC))			
Int. Cl <sup>7</sup> H01L31/048, C08L23/26			
B. 調査を行った分野			
調査を行った最小限資料 (国際特許分類 (IPC))			
Int. Cl <sup>7</sup> H01L31/04-31/048, C08L23/26, C08J5/18			
最小限資料以外の資料で調査を行った分野に含まれるもの			
日本国実用新案公報 1922-1996年 日本国公開実用新案公報 1971-2004年 日本国登録実用新案公報 1994-2004年 日本国実用新案登録公報 1996-2004年			
国際調査で使用した電子データベース (データベースの名称、調査に使用した用語)			
C. 関連すると認められる文献			
引用文献の カテゴリー*	引用文献名 及び一部の箇所が関連するときは、その関連する箇所の表示	関連する 請求の範囲の番号	
Y	JP 2002-9309 A (三菱化学株式会社) 2002.01.11 全文全図	1-7	
Y	段落0019	2-7	
Y	段落0014 (ファミリーなし)	3-7	
Y	JP 2003-46104 A (大日本印刷株式会社) 2003.02.14 全文全図 (ファミリーなし)	1-7	
<input checked="" type="checkbox"/> C欄の続きにも文献が列挙されている。 <input type="checkbox"/> パテントファミリーに関する別紙を参照。			
* 引用文献のカテゴリー		の日の後に公表された文献	
「A」 特に関連のある文献ではなく、一般的技術水準を示すもの		「T」 国際出願日又は優先日後に公表された文献であって出願と矛盾するものではなく、発明の原理又は理論の理解のために引用するもの	
「E」 国際出願日前の出願または特許であるが、国際出願日以後に公表されたもの		「X」 特に関連のある文献であって、当該文献のみで発明の新規性又は進歩性がないと考えられるもの	
「L」 優先権主張に疑義を提起する文献又は他の文献の発行日若しくは他の特別な理由を確立するために引用する文献 (理由を付す)		「Y」 特に関連のある文献であって、当該文献と他の1以上の文献との、当業者にとって自明である組合せによって進歩性がないと考えられるもの	
「O」 口頭による開示、使用、展示等に言及する文献		「&」 同一パテントファミリー文献	
「P」 国際出願日前で、かつ優先権の主張の基礎となる出願			
国際調査を完了した日 14.09.04		国際調査報告の発送日 05.10.2004	
国際調査機関の名称及びあて先 日本国特許庁 (ISA/J.P) 郵便番号100-8915 東京都千代田区霞が関三丁目4番3号		特許庁審査官 (権限のある職員) 近藤 幸浩 電話番号 03-3581-1101 内線 3253	

C (続き) . 関連すると認められる文献		
引用文献の カテゴリー*	引用文献名 及び一部の箇所が関連するときは、その関連する箇所の表示	関連する 請求の範囲の番号
Y	JP 2003-46105 A (大日本印刷株式会社) 全文全図 (ファミリーなし)	1-7
Y	JP 2003-49004 A (三菱樹脂株式会社) 全文全図 (ファミリーなし)	1-7
A	JP 5-186610 A (三菱油化株式会社) 全文全図 & JP 6-104729 B2	1-7
A	JP 58-60579 A (三井ポリケミカル株式会社) 全文全図 & JP 62-14111 B2	1-7
A	JP 58-63178 A (三井ポリケミカル株式会社) 全文全図 & JP 62-9232 B2	1-7